

PAT-NO: JP02000203804A  
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2000203804 A  
TITLE: FUEL REFORMER AND REFORMING  
OF FUEL  
PUBN-DATE: July 25, 2000

## INVENTOR-INFORMATION:

NAME  
COUNTRY  
AOYAMA, SATOSHI N/A  
ARAKI, YASUSHI N/A

## ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME  
COUNTRY  
TOYOTA MOTOR CORP N/A

APPL-NO: JP11008431

APPL-DATE: January 14, 1999

INT-CL (IPC): C01B003/48, C01B003/34, H01M008/04  
, H01M008/06

## ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a compact fuel reformer good in efficiency.

SOLUTION: This fuel reformer 20 is obtained by designing a shift reactional part 32 so as to provide about 40% based on the maximum capacity of a reforming part 30 as the maximum capacity. Air is fed from a blower 46 to a hydrogen-rich gas according to a feed rate in excess of the maximum capacity of the shift reactional part 32 when the hydrogen-rich gas is fed to the shift reactional part 32 at the high feed rate in excess of the maximum capacity. Thereby, an oxidizing reaction of carbon monoxide is carried out in addition to the shift reaction. The concentration of the carbon monoxide in the hydrogen-rich gas at an outlet of the shift reactional part 32 is regulated to a desired concentration or below by controlling the feed rate of the air. As a result, the fuel reformer 20 can be compacted and an energy required for heating up at the time of starting can be reduced.

COPYRIGHT: (C) 2000, JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-203804

(P2000-203804A)

(13)公開日 平成12年7月25日(2000.7.25)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テマコト<sup>®</sup>(参考)

C 01 B 3/48

C 01 B 3/48

4 G 0 4 0

3/34

3/34

5 H 0 2 7

H 01 M 8/04

H 01 M 8/04

Z

8/06

8/06

G

審査請求 未請求 請求項の数14 OL (全 9 頁)

(21)出願番号

特願平11-8431

(71)出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(22)出願日

平成11年1月14日(1999.1.14)

(72)発明者 青山 智

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動  
車株式会社内

(72)発明者 荒木 康

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動  
車株式会社内

(74)代理人 100075258

弁理士 吉田 研二 (外2名)

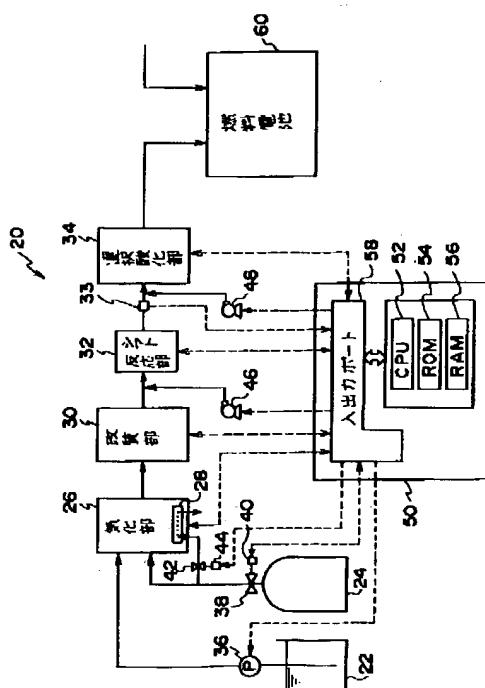
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 燃料改質装置および燃料改質方法

(57)【要約】

【課題】 コンパクトで効率の良い燃料改質装置を提供する。

【解決手段】 改質部30の最大能力に対して40%程度を最大能力とするようシフト反応部32を設計する。シフト反応部32にその最大能力を越えて水素リッチガスが供給されるときには、その供給量に応じて水素リッチガスにプロワ46から空気を供給し、シフト反応に加えて一酸化炭素の酸化反応を行なう。空気の供給量の制御によりシフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所望の濃度以下にする。この結果、燃料改質装置20をコンパクトなものにすると共に、起動時に必要な昇温のためのエネルギーを小さくすることができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質装置であって、前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質部と、該改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とし、該改質部から供給される前記水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応部と、該シフト反応部に酸素を含有する酸化ガスを供給する酸化ガス供給手段と、前記改質部から前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を検出する能力超過検出手段と、該超過を検出したとき、前記酸化ガス供給手段により前記シフト反応部に前記酸化ガスが供給されるよう該酸化ガス供給手段を制御する酸化ガス供給制御手段とを備える燃料改質装置。

【請求項2】 前記酸化ガス供給制御手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素に対して該シフト反応部に供給される酸化ガスに含まれる酸素が所定のモル比となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段である請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項3】 前記モル比は、少なくとも0.05または0.2以上のモル比である請求項2記載の燃料改質装置。

【請求項4】 請求項1ないし3いずれか記載の燃料改質装置であって、

前記能力超過検出手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出するガス流量検出手段と、該検出された水素リッチなガスの流量が前記シフト反応部の最大能力を超過しているかを判定する超過判定手段とを備える燃料改質装置。

【請求項5】 前記ガス流量検出手段は、前記炭化水素系からなる燃料の前記改質部への供給量に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出する手段である請求項4記載の燃料改質装置。

【請求項6】 前記請求項1ないし5いずれか記載の燃料改質装置であって、前記能力超過検出手段は、

前記シフト反応部による反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出する一酸化炭素濃度検出手段と、

該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を判定する超過判定手段とを備える燃料改質装置。

【請求項7】 前記酸化ガス供給制御手段は、前記一酸

10

20

30

40

50

化炭素濃度検出手段により検出される一酸化炭素濃度が所定濃度以下となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段である請求項6記載の燃料改質装置。

【請求項8】 前記シフト反応部の能力が前記シフト反応に必要な触媒を担持する触媒担持部材の容積で示されるとき、前記所定の割合は50%以下の容積である請求項1ないし7いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項9】 前記シフト反応部にシフト反応のための触媒は銅-亜鉛系の触媒である請求項1ないし8いずれか記載の燃料改質装置

【請求項10】 炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質方法であって、

前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質ステップと、

該改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応ステップと、

前記改質ステップにより改質された水素リッチなガスが前記シフト反応ステップに用いられる反応層に該反応層の能力を超えて供給されるとき、該水素リッチなガスに酸素を含有する酸化ガスを混和させて該反応層に供給する酸化ガス混和ステップとを備える燃料改質方法。

【請求項11】 請求項10記載の燃料改質方法であって、

前記酸化ガス混和ステップは、前記反応層に供給される水素リッチなガスの流量を検出し、

該検出された水素リッチなガスの流量に基づいて該水素リッチガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、該水素リッチなガスの流量に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップである燃料改質方法。

【請求項12】 請求項10記載の燃料改質方法であって、

前記酸化ガス混和ステップは、前記シフト反応ステップ後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出し、該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記水素リッチなガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、該一酸化炭素濃度に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップである燃料改質方法。

【請求項13】 前記シフト反応ステップに用いられる反応層の能力は前記改質ステップから供給される水素リッチなガスの最大供給量に対して50%以下である請求項10ないし12いずれか記載の燃料改質方法。

【請求項14】 前記シフト反応ステップは、銅-亜鉛系の触媒を用いて前記シフト反応を行なうステップである請求項10ないし13いずれか記載の燃料改質方法。

【発明の詳細な説明】

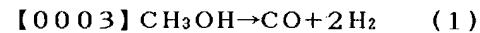
【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料改質装置およ

び燃料改質方法に関し、詳しくは、炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質装置および炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、この種の燃料改質装置としては、メタノールを300～400℃の温度で反応させて水素リッチなガスに改質する改質部と、改質部により改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素を200～300℃の温度で反応させて水素リッチガス中の水素の含有率を高めるシフト反応部とを備えるものが提案されている（たとえば特開平6-24702号公報など）。この装置が二つの温度の異なる反応層を有するのは、メタノールを次式（1）と（2）によって水素リッチなガスに改質する際、式（1）が吸熱反応で反応速度も速いのに対し、式（2）は発熱反応でゆっくり進行するため、改質部だけでは十分に式（2）のシフト反応を行えないことに基づく。



## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、こうした従来の燃料改質装置では、上述の式（2）のシフト反応を十分に行なうことができるよう改質部の最大能力に適応した最大能力を持つシフト反応部とされるから、装置が大型化するといった問題があった。この装置の大型化は、起動時にシフト反応部を十分に昇温させるのに多くのエネルギーと時間を要するといった問題を引き起こす。また、装置の大型化は、最大能力よりずっと小さな領域での運転では効率が低くなるという問題をも生じる。

【0005】本発明の燃料改質装置および燃料改質方法は、こうした装置の大型化によって生じる問題を解決し、コンパクトで効率の良い燃料改質装置を提供すると共に、こうしたコンパクトで効率の良い燃料改質装置とするための燃料の改質方法を提供することを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本発明の燃料改質装置は、上述の目的の少なくとも一部を達成するために以下の手段を採った。

【0007】本発明の燃料改質装置は、炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質装置であって、前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質部と、該改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とし該改質部から供給される前記水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応部と、該シフト反応部に酸素を含有する酸化ガスを供給する酸化ガス供給手段と、前記改質部から前記シフト反応部に供

給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を検出する能力超過検出手段と、該超過を検出したとき前記酸化ガス供給手段により前記シフト反応部に前記酸化ガスが供給されるよう該酸化ガス供給手段を制御する酸化ガス供給制御手段とを備えることを要旨とする。

【0008】この本発明の燃料改質装置では、改質部から供給される水素リッチなガスがシフト反応部の最大能力を超えないときにはシフト反応部により上述の式

10 (2) のシフト反応により水素リッチなガスの水素の含有率を高め、水素リッチなガスがシフト反応部の最大能力を超えてシフト反応部に供給されるときには供給される酸化ガスに含有される酸素により水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を酸化することにより水素リッチなガスの一酸化炭素を含有率を低下させる。ここで、「所定の割合」は、こうした燃料改質装置から水素リッチな燃料の供給を受ける装置（例えば、燃料電池や水素エンジンなど）の運転特性に応じて定められるものであり、例えば、この水素リッチな燃料の供給を受ける装置を稼働したときの平均値やこの平均値より若干高めまたは低めの値としたり、または稼働時の中央値やこの中央値より若干高めまたは低めの値としたり、装置全体の効率から求められる値とするものも含まれる。

20 【0009】本発明の燃料改質装置によれば、シフト反応部を改質部の最大能力に対して所定の割合を最大能力とすることにより、シフト反応部をコンパクトなものにすることができる。この結果、起動時におけるシフト反応部の昇温に必要なエネルギーを小さくすることができると共にその時間も短くすることができる。また、シフト反応部がコンパクトだから、改質部の最大能力よりずっと小さな領域で燃料改質装置が運転されたときに生じる効率の低下を防止することができ、装置全体の効率を向上させることができる。

30 【0010】こうした本発明の燃料改質装置において、前記酸化ガス供給制御手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素に対して該シフト反応部に供給される酸化ガスに含まれる酸素が所定のモル比となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段であるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応に対する酸化反応の割合を制限することができる。この態様の燃料改質装置において、前記モル比は、少なくとも0.05または0.2以上のモル比であるものとすることもできる。なお、このモル比は、燃料改質装置から水素リッチな燃料の供給を受ける装置が許容する一酸化炭素濃度などによって定めることもできる。

40 【0011】また、本発明の燃料改質装置において、前記能力超過検出手段は、前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出するガス流量検出手段と、該検出された水素リッチなガスの流量が前記シフト反応部の最大能力を超過しているかを判定する超過判定

手段とを備えるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量に基づいてシフト反応部に供給する酸化ガスを制御することができる。この態様の燃料改質装置において、前記ガス流量検出手段は、前記炭化水素系からなる燃料の前記改質部への供給量に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの流量を検出する手段であるものとすることもできる。こうすれば、炭化水素系からなる燃料の改質部への供給量から水素リッチなガスの流量がシフト反応部の最大能力を超過しているかを判定でき、この炭化水素系からなる燃料の供給量に基づいてシフト反応部に供給する酸化ガスを制御することができる。

【0012】あるいは、本発明の燃料改質装置において、前記能力超過検出手段は、前記シフト反応部による反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出する一酸化炭素濃度検出手段と、該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記シフト反応部に供給される水素リッチなガスの該シフト反応部の最大能力に対する超過を判定する超過判定手段とを備えるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応部による反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を高い精度で制御することができる。この態様の燃料改質装置において、前記酸化ガス供給制御手段は、前記一酸化炭素濃度検出手段により検出される一酸化炭素濃度が所定濃度以下となるよう前記酸化ガス供給手段を制御する手段であるものとすることもできる。こうすれば、シフト反応部による反応の後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を所定濃度以下とすることができる。

【0013】さらに、本発明の燃料改質装置において、前記シフト反応部の能力が前記シフト反応に必要な触媒を担持する触媒担持部材の容積で示されるとき、前記所定の割合は50%以下の容積であるものとすることもできる。こうすればシフト反応部を半分程度の小さなものにすることができる。

【0014】この他、本発明の燃料改質装置において、前記シフト反応部にシフト反応のための触媒は銅-亜鉛系の触媒であるものとすることもできる。

【0015】本発明の燃料改質方法は、炭化水素系からなる燃料を水素リッチな燃料とする燃料改質方法であって、前記炭化水素系からなる燃料を水素リッチなガスに改質する改質ステップと、該改質された水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を水と反応させて水素と二酸化炭素とにシフトするシフト反応ステップと、前記改質ステップにより改質された水素リッチなガスが前記シフト反応ステップに用いられる反応層に該反応層の能力を超えて供給されるとき該水素リッチなガスに酸素を含有する酸化ガスを混和させて該反応層に供給する酸化ガス混和ステップとを備えることを要旨とする。

【0016】この本発明の燃料改質方法では、水素リッチなガスがシフト反応ステップに用いられる反応層にそ

の能力を超えない範囲で供給されるときにはシフト反応ステップによる上述の式(2)のシフト反応により水素リッチなガスの水素の含有率を高め、水素リッチなガスがシフト反応ステップに用いられる反応層にその能力を超えて供給されるときには水素リッチなガスに酸化ガスが混和されて水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素の一部を酸化することにより水素リッチなガスの一酸化炭素を含有率を低下させる。この結果、シフト反応ステップに用いる反応層をコンパクトなものとすることがで

き、起動時におけるシフト反応ステップに用いる反応層の昇温に必要なエネルギーを小さくしたり、その時間も短くすることができる。しかも、このシフト反応ステップに用いる反応層がコンパクトだから、改質ステップに用いられる反応層の最大能力からずっと小さな領域で燃料の改質が行なわれるときに生じる効率の低下を防止することができ、装置全体の効率を向上させることができ

る。

【0017】こうした本発明の燃料改質方法において、前記酸化ガス混和ステップは、前記反応層に供給される水素リッチなガスの流量を検出し、該検出された水素リッチなガスの流量に基づいて該水素リッチなガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、該水素リッチなガスの流量に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップであるものとしたり、あるいは、前記酸化ガス混和ステップは、前記シフト反応ステップ後の水素リッチなガス中の一酸化炭素濃度を検出し、該検出された一酸化炭素濃度に基づいて前記水素リッチなガスの前記反応層の能力に対する超過を判定し、該一酸化炭素濃度に基づいて前記酸化ガスを混和させるステップであるものとすること

もできる。

【0018】また、本発明の燃料改質方法において、前記シフト反応ステップに用いられる反応層の能力は前記改質ステップから供給される水素リッチなガスの最大供給量に対して50%以下であるものとすることもできる。さらに、本発明の燃料改質方法において、前記シフト反応ステップは、銅-亜鉛系の触媒を用いて前記シフト反応を行なうステップであるものとすることもできる。

#### 【0019】

【発明の実施の形態】次に、本発明の実施の形態を実施例を用いて説明する。図1は、本発明の一実施例である燃料改質装置20の構成の概略を示す構成図である。図示するように、燃料改質装置20は燃料電池60に接続されており、燃料電池60は、燃料改質装置20により改質された燃料ガスの供給を受けて発電する。

【0020】燃料改質装置20は、水タンク22から供給される水を気化させると共に気化させた水と天然ガス

タンク24から供給されるメタンを主成分とする天然ガスとを混和する気化部26と、水蒸気と混和した天然ガスを水素を含有する水素リッチガスに改質する改質部3

0と、水素リッチガスに含まれる一酸化炭素に対して上述の式(2)のシフト反応を行なうシフト反応部32と、シフト反応部32によってシフトされなかつ一酸化炭素を選択的に酸化する選択酸化部34と、燃料改質装置20全体を制御する電子制御ユニット50とを備える。

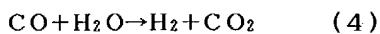
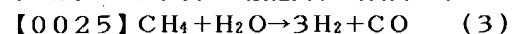
【0021】水タンク22には水を気化部26に供給するためのポンプ36が設置されており、このポンプ36は、電子制御ユニット50と信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるようになっている。天然ガスタンク24は、高圧タンクであり、その出口には天然ガスの流出量を調節可能な流量計付電磁弁38が取り付けられている。この流量計付電磁弁38のアクチュエータ40は信号ラインで電子制御ユニット50に接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるようになっている。

【0022】気化部26の内部には、気化部26内の温度を高めるための燃焼部28が設けられており、天然ガスタンク24から供給される天然ガスの一部を燃焼部28に導入し燃焼することでその熱源としている。このため、天然ガスの気化部26への供給管には燃焼部28に供給するための分岐管が取り付けられており、この分岐管には天然ガスの燃焼部28への供給量を制御するための電磁弁42が取り付けられている。この電磁弁42のアクチュエータ44も電子制御ユニット50に信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50による駆動制御を受けるようになっている。

【0023】また、気化部26は電子制御ユニット50に信号ラインで接続されており、電子制御ユニット50によって気化部26の内部に設置された図示しない温度計により検出される気化部26内部の温度が600~800°Cの範囲内で設定された温度(例えば650°Cなど)となるよう制御を受けている。温度制御の実際は、燃焼部28のオンオフ制御と分岐管に取り付けられた電磁弁42の開閉制御によって行なわれる。

【0024】改質部30には、ニッケル系の触媒を担持したペレットが充填されている。改質部30も電子制御ユニット50と信号ラインで接続されており、その温度が600~800°Cの範囲内で設定された温度(例えば800°Cなど)となるよう電子制御ユニット50による制御を受けている。なお、制御の実際は、改質部30内部に設置された図示しない温度計により検出される改質部30の温度が前述の温度となるよう改質部30に設置された図示しない熱交換器の媒体の流動をコントロールすることによってできるが、実施例では、気化部26の温度制御により改質部30の温度制御をも行なうものとした。改質部30に充填された触媒上では、次式(3)および(4)の反応により天然ガスを水素リッチガスに改質する。式(4)は上述の式(2)と同一であり、発熱反応であるから、改質部30の温度(800

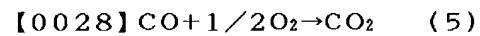
°C)ではその熱平衡の関係で反応率は50%程度となる。この結果、改質部30により改質された水素リッチガスは、10%程度の一酸化炭素を含有する。



【0026】シフト反応部32には、上式(4)のシフト反応を行なうために用いる銅-亜鉛系の触媒を担持したペレットが充填されており、その容積は、改質部30が最大能力の40%の能力で運転されたときに最大能力に達するように設計されている。即ち、シフト反応部32は、改質部30が最大能力の40%まで運転されるときには改質部30から供給される水素リッチなガスに含まれる一酸化炭素を上式(4)のシフト反応でシフトさせて水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定濃度(例えば1%)以下にことができるが、最大能力の40%以上で改質部30が運転されると改質部30から供給される水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定濃度以下にすることはできない、という触媒容積として設計されているのである。シフト反応部32への水素リッチガスの供給量とシフト反応部32出口での水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度との関係の一例を図2に示す。

図中「負荷」はシフト反応部32への水素リッチガスの供給量を改質部30の最大能力を100%として表示したものである。したがって、負荷が40%のときがシフト反応部32の最大能力であり、これより負荷が大きくなると、水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度は増加する。

【0027】シフト反応部32の水素リッチガスの供給管には分岐管が設けられており、この分岐管には水素リッチガスに空気を圧入するプロワ46が設置されている。水素リッチガスに空気が圧入されてシフト反応部32に供給されると、シフト反応部32では上式(4)のシフト反応の他に空気中に含まれる酸素によって次式(5)の酸化反応も行なわれる。したがって、改質部30がその最大能力の40%を越えて運転されるときに、プロワ46を駆動して水素リッチガスに空気を混入させれば水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を所定濃度以下にことができる。



【0029】上述の水素リッチガスへの空気の混入量は、実験の結果からモル比 $[\text{O}] / [\text{CO}]$ で0.05以上で好ましくは0.2以上がよい。実験としては、Cu/ZnOを触媒として担持した直徑3mmで長さが3mmの円筒形のペレットを反応層に $10\text{cm}^3$ 充填して触媒温度を200°Cとし、これに水素が80%，二酸化炭素9.78%，一酸化炭素10.09%のモデルガスをモデルガス：水蒸気=70:30となるよう加湿したガスを $833\text{cm}^3/\text{min}$ の流量で供給するものを用い、モデルガスへ空気をモル比 $[\text{O}] / [\text{CO}]$ で0.125, 0.25で混入するものを用いた。この実

験の結果は、モデルガスへの空気の混入量がモル比  $[O]/[CO]$  で 0, 0, 1.25, 0, 2.5 に対し、反応層出口でのモデルガス中の一酸化炭素の濃度は、それぞれ 3.1%, 1.47%, 1.05% であった。この実験結果から、一酸化炭素濃度を低減するという効果はモル比  $[O]/[CO]$  で 0.05 以上で奏し、このモル比で 0.2 以上とすれば一酸化炭素濃度を 1% 程度まで低減することができる。

【0030】シフト反応部 32 も電子制御ユニット 50 に信号ラインによって接続されており、上式(4)のシフト反応を熱平衡により右側に進行させるために、電子制御ユニット 50 によりその温度が 200~400°C の範囲内の温度となるよう制御されている。

【0031】選択酸化部 34 には、水素の酸化反応に優先して上式(5)の酸化反応を行なうための白金-ルテニウム系の触媒を担持したペレットが充填されており、改質部 30 やシフト反応部 32 と同様に電子制御ユニット 50 に信号ラインで接続されており、その温度が 100~200°C の範囲内の温度となるよう電子制御ユニット 50 による制御を受けている。なお、実施例では、シフト反応部 32 と選択酸化部 34 との間に、水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を検出する一酸化炭素濃度計 33 と、水素リッチガスに空気を混入させるプロワ 48 とが設けられており、一酸化炭素濃度計 33 により検出された一酸化炭素の濃度に応じてプロワ 48 により水素リッチガスに空気を混入できるようになっている。一酸化炭素濃度計 33 もプロワ 48 も電子制御ユニット 50 に信号ラインで接続されている。

【0032】電子制御ユニット 50 は、CPU 52 を中心として構成されたマイクロコンピュータであり、CPU 52 により実行される処理プログラムや各種データを記憶した ROM 54 と、データを一時的に記憶する RAM 56 と、各種データの入力および制御信号の出力を行なう入出力ポート 58 とを備える。入出力ポート 58 には、流量計付電磁弁 38 からの天然ガスの重量流量、気化部 26 や改質部 30、シフト反応部 32、選択酸化部 34 に設置された図示しない温度計からの各部の温度、一酸化炭素濃度計 33 からの水素リッチガス中の一酸化炭素濃度などが入力され、ポンプ 36 への駆動信号、流量計付電磁弁 38 のアクチュエータ 40 への駆動信号、電磁弁 42 のアクチュエータ 44 への駆動信号、気化部 26 の燃焼部 28 へのオンオフ信号、プロワ 46 やプロワ 48 への駆動信号が出力されている。

【0033】こうして構成された実施例の燃料改質装置 20 は、図 3 に例示する空気供給量制御ルーチンを実行することにより、シフト反応部 32 へ供給される水素リッチガスの空気の混入量を制御している。なお、この空気供給量制御ルーチンは所定時間毎（例えば、10 ms 每）に繰り返し実行されている。

【0034】この空気供給量制御ルーチンが実行される

- と、CPU 52 は、まず流量計付電磁弁 38 により検出される天然ガスの流出量を天然ガス供給量  $QM$  として読み込む処理を実行する（ステップ S100）。続いて、読み込んだ天然ガス供給量  $QM$  を閾値  $Q_{ref}$  と比較する（ステップ S110）。なお、閾値  $Q_{ref}$  はシフト反応部 32 の最大能力に相当する値として設定されている。天然ガス供給量  $QM$  が閾値  $Q_{ref}$  以下のときは、シフト反応部 32 の最大能力を超えていないと判断しプロワ 46 による水素リッチガスへの空気の供給量  $QA$  10 A に値 0 を設定し（ステップ S120）、天然ガス供給量  $QM$  が閾値  $Q_{ref}$  より大きいときは、シフト反応部 32 の最大能力を超えていると判断してプロワ 46 による水素リッチガスへの空気の供給量  $QA$  に天然ガス供給量  $QM$  に基づいて定まる値（例えば、前述のモル比  $[O]/[CO]$  で 0.2 となる空気量の値）を設定する（ステップ S130）。そして、シフト反応部 32 に供給される水素リッチガスに混入される空気量が供給量  $QA$  となるようプロワ 46 を駆動して（ステップ S140）、本ルーチンを終了する。
- 【0035】このように、天然ガス供給量  $QM$  がシフト反応部 32 の最大能力に相当する値以下のときは、プロワ 46 による空気の供給量  $QA$  を値 0 とすることにより、シフト反応部 32 は通常のシフト反応により一酸化炭素を水素と二酸化炭素とにシフトし、天然ガス供給量  $QM$  がシフト反応部 32 の最大能力に相当する値を越えるときは、プロワ 46 によりシフト反応部 32 に供給される水素リッチガスに天然ガス供給量  $QM$  に応じた空気の供給量  $QA$  を供給することにより、シフト反応部 32 で通常のシフト反応に加えて一酸化炭素の酸化反応を行なって水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度を低減するのである。
- 【0036】以上説明した実施例の燃料改質装置 20 によれば、水素リッチガスがシフト反応部 32 にその最大能力に至る範囲内で供給されたときには通常のシフト反応により水素リッチガス中の水素の含有率を高めると共に水素リッチガス中の一酸化炭素を所定濃度以下まで低減し、最大能力を超えて供給されたときには空気を混入させてシフト反応に加えて酸化反応を行なうことにより水素リッチガス中の水素の含有率を高めると共に水素リッチガス中の一酸化炭素を所定濃度以下まで低減することができる。この結果、シフト反応部 32 を小さなものとすることができるから、燃料改質装置 20 を起動する際にシフト反応部 32 を昇温するために必要なエネルギーを小さくすることができると共にその時間も短くすることができる。また、シフト反応部 32 が小さいから、改質部 30 をその能力よりずっと小さな領域で燃料改質装置 20 を運転するときでも燃料改質装置 20 の効率を低下させることができなく、燃料改質装置 20 全体の効率を向上させることができる。こうした燃料改質装置 20 と燃料電池 60 を車載する場合には、上述の効果は大き

11

くクローズアップされる。この場合、車両の運転特性にもよるが、車両に必要な最大エネルギーに対して駆動の平均エネルギーを40~50%程度と考えることができるから、シフト反応部32の最大能力を改質部30の最大能力の40~50%として設計することができる。

【0037】実施例の燃料改質装置20では、天然ガスタンク24から流出する天然ガスの流量を天然ガスの供給量として検出することにより、シフト反応部32に供給される水素リッチガスの供給量がシフト反応部32の最大能力を超過しているかを判定し、天然ガスの供給量に応じた空気をシフト反応部32に供給される水素リッチガスに混入させたが、改質部30とシフト反応部32との間に水素リッチガスの流量を検出する流量計を設け、この流量計により検出された水素リッチガスの流量に基づいてシフト反応部32への供給が最大能力を超過しているか否かを判定すると共に水素リッチガスに混入させる空気量を設定するものとしてもよい。

【0038】また、シフト反応部32と選択酸化部34との間に設置された一酸化炭素濃度計33により検出されるシフト反応部32出口での水素リッチガス中の一酸化炭素濃度COに基づいてシフト反応部32に供給される水素リッチガスに混入させる空気量を設定するものとしてもよい。この場合、図3の空気供給量制御ルーチンに代えて図4に示す空気供給量制御ルーチンを実行すればよい。以下、この図4のルーチンについて簡単に説明する。

【0039】図4の空気供給量制御ルーチンが実行されると、CPU52は、まず、一酸化炭素濃度計33により検出されるシフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素濃度COを読み込み(ステップS200)、読み込んだ一酸化炭素濃度COを閾値C1および閾値C2と比較する(ステップS210, S220)。閾値C2はシフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素の許容濃度として設定されるものであり、閾値C1は水素リッチガスへの空気供給量QAの増減を頻繁に行なわないようヒステリシスを持たせるために導入された閾値C2より少し小さい値として設定されるものである。一酸化炭素濃度COが閾値C1と閾値C2との間にあるときには空気供給量QAの変更は行なわず、一酸化炭素濃度COが閾値C2より大きいときには空気供給量QAを△Qだけ増加し(ステップS220)、一酸化炭素濃度COが閾値C1より小さいときには空気供給量QAを△Qだけ減少する(ステップS230)。ここで、増減量△Qは燃料改質装置20の規模や図4のルーチンが実行される繰り返し頻度などによって定められるものである。なお、ステップS230で△Qだけ減じた空気供給量QAが負の値となるときには空気供給量QAに値を設定する(ステップS240, S250)。そして、プロワ46によりシフト反応部32に供給される水素リッチガスに混入される空気が空気供給量QAとなる

12

ようプロワ46を駆動する(ステップS260)。

【0040】こうした図4の空気供給量制御ルーチンを実行する変形例の燃料改質装置20によれば、燃料改質装置20の起動後に初めて一酸化炭素濃度計33により検出される一酸化炭素濃度COが閾値C2を超えるときに、シフト反応部32の最大能力を超えて水素リッチガスが供給されていると判断することができる。しかも、一酸化炭素濃度計33により検出される一酸化炭素濃度COによってフィードバック制御するから、シフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素濃度COを確実に所望の濃度以下にすることができる。

【0041】実施例の燃料改質装置20では、改質する燃料としてメタンを主成分とする天然ガスを用いたが、エタンなどの飽和系の炭化水素やエチレンなどの不飽和系の炭化水素の他、メタノールなどの炭化水素系のアルコールなどを改質する燃料としてもよい。この場合、流量計付電磁弁38に代えてそれぞれの重量流量を計測できる計器を設置すると共に、改質部30に充填される触媒を改質する燃料の改質反応に適するものに変更し、気化部26や改質部30の温度も改質する燃料に適応する温度とすればよい。

【0042】また、実施例の燃料改質装置20では、プロワ46によりシフト反応部32に供給される水素リッチガスに空気を混入させたが、酸素を含有するものであればよいから種々の酸素を含有する酸化ガスを用いることができる。

【0043】さらに、実施例の燃料改質装置20では、燃料改質装置20により改質された改質燃料である水素リッチガスを燃料電池60に供給するものとしたが、燃料電池60の他、水素を燃料とする水素エンジンなど他の水素消費機関に供給するものとしてもよい。この場合、シフト反応部32の触媒容積は、水素消費機関の使用特性などによって定めることができる。

【0044】以上、本発明の実施の形態について実施例を用いて説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において、種々なる形態で実施し得ることは勿論である。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例である燃料改質装置20の構成の概略を示す構成図である。

【図2】 水素リッチガスの供給量とシフト反応部32出口の水素リッチガス中の一酸化炭素の濃度との関係の一例を示すグラフである。

【図3】 実施例の燃料改質装置20のCPU52で実行される空気供給量制御ルーチンの一例を示すフローチャートである。

【図4】 変形例の空気供給量制御ルーチンの一例を示すフローチャートである。

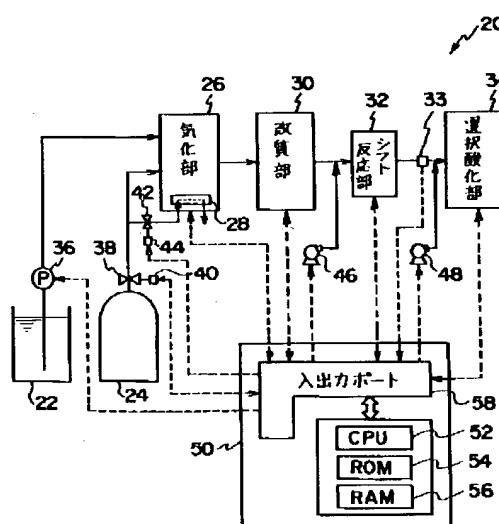
#### 【符号の説明】

50

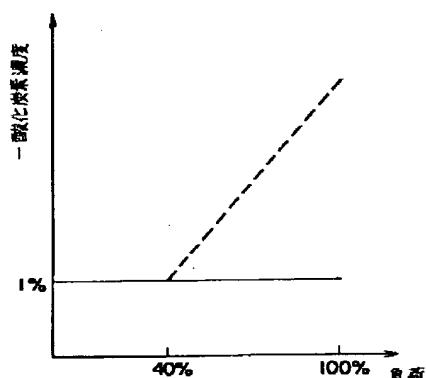
20 燃料改質装置、22 水タンク、24 天然ガスタンク、26 気化部、28 燃焼部、30 改質部、32 シフト反応部、33 一酸化炭素濃度計、34 選択酸化部、36 ポンプ、38 流量計付電磁弁、40 アクチュエータ、42 電磁弁、44 アクチュエータ、46 ブロワ、48 ブロワ、50 電子制御ユニット、52 CPU、54 ROM、56 RAM、58 入出力ポート、60 燃料電池。

0 アクチュエータ、42 電磁弁、44 アクチュエータ、46 ブロワ、48 ブロワ、50 電子制御ユニット、52 CPU、54 ROM、56 RAM、58 入出力ポート、60 燃料電池。

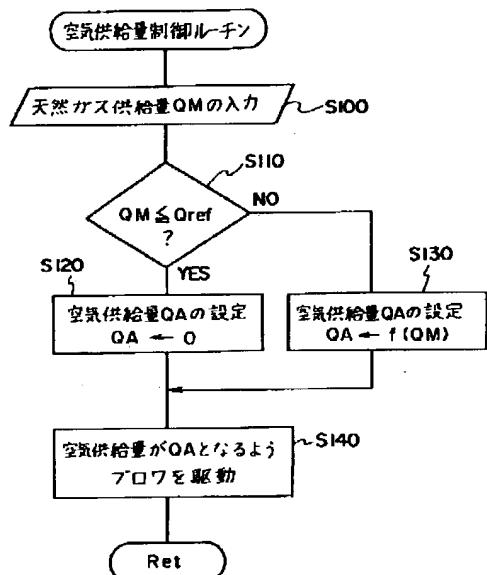
【図1】



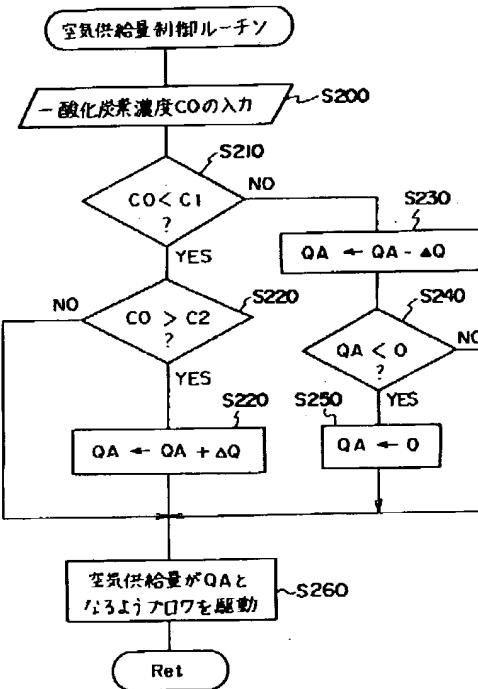
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4G040 EA03 EA06 EB18 EB42 EB43  
EC01  
5H027 AA02 BA01 BA17 KK21 KK31  
MM01